

【書類名】 明細書

【発明の名称】 表面改質無機酸化物粉末とその用途

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 表面改質された無機酸化物粉末であって、残留有機揮発成分が 30 ppm 以下であることを特徴とする表面改質無機酸化物粉末。

【請求項 2】 表面改質の後に有機揮発成分の揮発温度以上および表面改質処理剤の分解温度以下で加熱処理することによって残留有機揮発成分を 30 ppm 以下に低減した請求項 1 の表面改質無機酸化物粉末。

【請求項 3】 表面処理の際に 200°C 以上～400°C 以下に加熱処理し、その後、さらに 150°C 以上～400°C 以下に加熱処理することによって粉末表面の揮発成分を除去した請求項 2 に記載する表面改質無機酸化物粉末。

【請求項 4】 長鎖アルキルシランを触媒と共に溶解してなる処理剤を用いて表面処理することにより残留有機揮発分を 30 ppm 以下に低減したことを特徴とする表面改質無機酸化物粉末。

【請求項 5】 炭素数 16 以上の長鎖アルキルシランをアミン触媒と共に溶解し、長鎖アルキルシランを希釀した処理剤を用いて表面処理した請求項 4 の表面改質無機酸化物粉末。

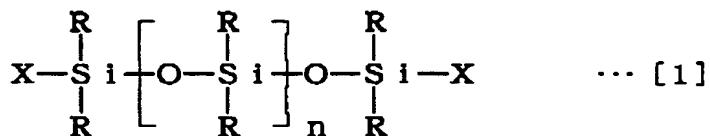
【請求項 6】 長鎖アルキルシランを 2～6 倍量に希釀してなる処理剤を用いて表面処理した請求項 5 の表面改質無機酸化物粉末。

【請求項 7】 上記処理剤を無機酸化物粉末の表面に存在させて 200°C 以上に加熱して表面処理した請求項 4、5 または 6 の表面改質無機酸化物粉末。

【請求項 8】 残留有機揮発分が 10 ppm 以下である請求項 1～7 の何れかに記載する表面改質無機酸化物粉末。

【請求項 9】 無機酸化物粉末がシリカ、アルミナ、チタニア、またはこれら二種以上の複合酸化物粒子である請求項 1～8 の何れかに記載する表面改質無機酸化物粉末。

【請求項 10】 次式 [1]、[2]、[3] または [4] の少なくとも一種のアルキルシランを用いて表面処理した請求項 1～9 の何れかに記載する表面改質無機酸化物粉末。



(式中、Rは水素またはアルキル基であり、アルキル基は一部がビニル基、フェニル基、ポリエーテル基、エボキシ基またはアミノ基によって置換されていてよい。各々のS iに結合するRは同種または異種でもよい。Xは上記R、ハロゲン原子、水酸基もしくはアルコキシ基の加水分解性基である。nは15～500の整数である。)



(式中、Rはアルキル基、Xはハロゲン原子、水酸基またはアルコキシ基、ただし、式[3]、[4]のR'、R'、R'は同一でも異なってもよく、好ましくはそのうちの少なくとも一つは炭素数6以上である。)

**【請求項1 1】** 請求項1～10の何れかに記載する表面改質無機酸化物粉体をウレタン樹脂、エボキシ樹脂、アクリル樹脂、不飽和ポリエステル樹脂、ビニルエステル樹脂、またはシリコーン変性樹脂に50重量%以下配合したことを特徴とする極性樹脂組成物。

**【請求項1 2】** 接着剤またはシーラントとして用いられる請求項1 1の極性樹脂組成物。

#### 【発明の詳細な説明】

#### 【0001】

#### 【発明の属する技術分野】

本発明は残留揮発成分が極めて少ない高疎水性の表面改質無機酸化物粉末に関する。粉体塗料や電子写真用トナーなどの外添剤、または接着剤や塗料などの粘度調整剤、または天然ゴムや合成ゴムおよびエンジニアプラスチックスなどの補強性充填剤、またはポリエチレンやポリエステルなどのフィルムのプロッキング

防止剤、接着剤またはシーラントなどの充填材などとして無機酸化物微粉末が用いられており、本発明はこれらの無機酸化物粉末について、表面改質後の残留揮発成分量が極めて少ない高疎水性の表面改質無機酸化物微粉末に関するものである。本発明の表面改質無機酸化物微粉末は揮発性化合物が発生すると不具合を生じる用途において特に有用である。

#### 【0002】

##### 【従来の技術】

シリカ、チタニア、アルミナなどの無機酸化物粉末は、粉体塗料や電子写真用トナーなどの外添剤、または接着剤や塗料などの樹脂の粘度調整剤、または天然ゴムや合成ゴムおよびエンジニアプラスチックスなどの補強性充填剤、またはポリエチレンやポリエステルなどのフィルムのプロッキング防止剤など広い分野で利用されている。

#### 【0003】

このような無機酸化物微粒子を表面改質処理することによって、さらに多機能な特性を付与することが行われている。具体的には、例えば、適当なカップリング剤やポリマーを用いて表面改質された無機酸化物微粉末が用いられている。一般に広く用いられている表面処理剤としては、アルキルシラン系化合物やシリコーンオイルなどなどが挙げられる。

#### 【0004】

##### 【発明の解決課題】

従来の表面改質無機酸化物粉末は表面改質処理剤が粉末表面に残留し、これが揮発して不都合を生じる場合がある。一般的なシリコーン化合物には低分子量のオリゴマーが含まれており、このようなシリコーン化合物を表面処理剤に用いると低分子量のオリゴマーが粉末表面に残留する。また、表面改質時の反応によっても低分子量のオリゴマーが生成して粉末表面に残留する場合がある。このような低分子量のオリゴマーは沸点も比較的低く、使用時あるいは保管環境によっては容易に揮発して不都合を生じることがある。

#### 【0005】

例えば、揮発性化合物が残留した無機酸化物粉末を樹脂に混練して分散させた

場合、加熱時に気泡が生じ、気泡を含む樹脂硬化物になる。また、このような無機酸化物粉末を電子写真用トナーの外添剤に用いると、複写機中では転写時に高温となるために揮発成分が発生して転写ドラム内を汚染することが懸念される。さらに、電子材料用の樹脂組成物、例えば接着剤などに用いた場合には揮発成分がスパークの原因となり、接点不良などの問題を引き起こす虞がある。

#### 【0006】

これらの問題に対応するため、無機酸化物粉末を表面改質後に有機溶媒を用いて洗浄することが提案されているが（特開平10-316406号公報）、微粒子を溶媒に分散させてしまうと十分に乾燥しても微粒子どうしが凝集し、結果的に微粒子の機能を損なうことになる。さらに、この凝集体を解碎して分級するのは手間がかかるだけでなくコスト高となる。

#### 【0007】

本発明は従来の表面改質無機酸化物粉末における上記問題を解決したものであり、残留揮発性成分が極めて少なく、従って、エポキシ樹脂等の極性樹脂に配合したときに高い増粘性を示すと共にその経時安定性に優れた無機酸化物微粉末を提供する。

#### 【0008】

##### 【課題を解決する手段】

本発明は、（1）表面改質された無機酸化物粉末であって、残留有機揮発成分が30ppm以下であることを特徴とする表面改質無機酸化物粉末に関する。

この表面改質無機酸化物粉末は、例えば、（2）表面改質の後に有機揮発成分の揮発温度以上および表面改質処理剤の分解温度以下で加熱処理することによって残留有機揮発成分を30ppm以下に低減した表面改質無機酸化物粉末であり、具体的には、例えば（3）表面処理の際に200℃以上～400℃以下に加熱処理し、その後、さらに150以上～400℃以下に加熱しながら粉末表面の揮発成分を除去した表面改質無機酸化物粉末である。

#### 【0009】

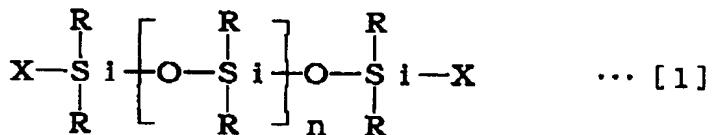
また、本発明の表面改質無機酸化物粉末は、例えば、（4）長鎖アルキルシランを触媒と共に溶剤に溶解してなる処理剤を用いて表面処理することにより残留

有機揮発分を30ppm以下に低減した表面改質無機酸化物粉末である。この表面改質無機酸化物粉末は、具体的には例えば、(5)炭素数16以上の長鎖アルキルシランをアミン触媒と共に溶剤に溶解し、長鎖アルキルシランを希釈した処理剤を用いて表面処理した表面改質無機酸化物粉末、(6)長鎖アルキルシランを2~6倍量に希釈してなる処理剤を用いて表面処理した表面改質無機酸化物粉末、(7)上記処理剤を無機酸化物粉末の表面に存在させて200℃以上に加熱して表面処理した表面改質無機酸化物粉末である。

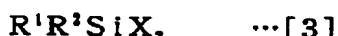
#### 【0010】

本発明の表面改質無機酸化物粉末は、好ましくは(8)残留有機揮発分が10ppm以下の表面改質無機酸化物粉末である。

本発明の表面改質無機酸化物粉末は、(9)無機酸化物粉末がシリカ、アルミナ、チタニア、またはこれら二種以上の複合酸化物粒子である表面改質無機酸化物粉末、(10)次式[1]、[2]、[3]または[4]の少なくとも一種のアルキルシランを用いて表面処理した表面改質無機酸化物粉末を含む。



(式中、Rは水素またはアルキル基であり、アルキル基は一部がビニル基、フェニル基、ポリエーテル基、エボキシ基またはアミノ基によって置換されていてよい。各々のS<sub>i</sub>に結合するRは同種または異種でもよい。Xは上記R、ハロゲン原子、水酸基もしくはアルコキシ基の加水分解性基である。nは15~500の整数である。)



(式中、Rはアルキル基、Xはハロゲン原子、水酸基またはアルコキシ基、ただし、式[3]、[4]のR'、R<sup>2</sup>、R<sup>3</sup>は同一でも異なってもよく、好ましくはそのうち

の少なくとも一つは炭素数 6 以上である。)

#### 【0011】

さらに、本発明は（11）上記何れかに記載する表面改質無機酸化物粉体をウレタン樹脂、エポキシ樹脂、アクリル樹脂、不飽和ポリエステル樹脂、ビニルエステル樹脂、またはシリコーン変性樹脂に 50 重量%以下配合したことを特徴とする極性樹脂組成物、（12）接着剤またはシーラントとして用いられる極性樹脂組成物に関する。

#### 【0012】

本発明の表面改質無機酸化物は残留揮発成分が極めて少ないので経時安定性に優れており、粉体塗料や電子写真用トナーなどの外添剤、接着剤や塗料などの粘度調整剤、天然ゴムや合成ゴムおよびエンジニアプラスチックスなどの補強性充填剤、ポリエチレンやポリエステルなどのフィルムのプロッキング防止剤、接着剤またはシーラントなどの充填材などとして好適である。

#### 【0013】

##### 【発明の実施の形態】

以下、本発明を実施形態に基づいて詳細に説明する。

本発明の無機酸化物粉末は、表面改質された無機酸化物粉末であって、残留有機揮発成分が 30 ppm 以下であることを特徴とし、例えば、（イ）長鎖アルキルシランを触媒と共に溶剤に溶解してなる処理剤を用いて表面処理することにより残留有機揮発分を 30 ppm 以下に低減した表面改質無機酸化物粉末、（ロ）表面改質の後に有機揮発成分の揮発温度以上および表面改質処理剤の分解温度以下で加熱処理することによって残留有機揮発分を 30 ppm 以下に低減した表面改質無機酸化物粉末である。

#### 【0014】

無機酸化物粉末はシリカ、アルミナ、チタニアなどの無機酸化物、あるいはこれら二種以上の無機酸化物からなる複合酸化物粒子でも良い。これらの無機酸化物粉末は湿式法、乾式法いずれの方法で合成されたもので良い。なお、乾式法で合成された無機酸化物、例えば、揮発性ケイ素化合物の火炎加水分解により生成されたシリカ粉末や、チタン化合物の火炎加水分解により生成した酸化チタン粉

末、アルミニウム化合物を原料とするアルミナ粉末などを好適に用いることができる。

#### 【0015】

具体的なシリカ粉末としては、窒素吸着法(BET)による比表面積が500m<sup>2</sup>/g未満のヒュームドシリカ(日本エロジル社製品:AEROSIL50, 90G, 130, 200, 300, 380, 380S等、デグサ社製品:TT600, OX50)、乾式法の酸化チタン粉末(日本エロジル社製品:P25)、アルミナ粉末(デグサ社製品:Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-C)、アルミナシリカ混合物粉末(デグサ社製品:MOX80, MOX170, COK84)などを本発明に用いることができる。

#### 【0016】

これらの無機酸化物粉末に、必要に応じて水を加えた後に、長鎖アルキルシランを触媒と共に溶剤に溶解してなる処理剤を用いて表面処理を行う。表面改質処理剤として用いる長鎖アルキルシランは炭素数16以上のものが好ましい。炭素数の多い長鎖アルキルシランを用いて処理したものは、炭素数が10以下程度の短鎖アルカリシランを用いた場合より高い疎水性が得られ、増粘効果も高い。また、疎水性が高いので水分の吸着が少なく、経時安定性に優れる。

#### 【0017】

表面改質処理剤としては上記長鎖アルキルシランを触媒と共に溶剤に溶解したもの要用いる。触媒はトリエチルアミン、ジエチルアミン、エチレンジアミンなどのアミン類や酢酸などを用いることができる。長鎖アルキルシランをこれらの触媒と共に用いることによってアルキルシランの加水分解反応が進み、無機酸化物粉末表面への固定化が促進される。

#### 【0018】

さらに表面改質処理剤は長鎖アルキルシランをアミン触媒と共に溶剤に溶解して上記長鎖アルキルシランを2~6倍量に希釈したものが好ましい。溶剤はアルキルシランの種類によって選択され、例えば、ヘキサン、トルエン、アルコール類、エーテル類など長鎖アルキルシランが溶解しやすいものが用いられる。長鎖アルキルシランを希釈して用いることによって、処理剤の粘性が低下し、これを無機酸化物粉末に噴霧したときに粉末表面に均一に付着させることができる。

## 【0019】

上記処理剤を用いた表面改質処理は窒素雰囲気下で行うのが好ましい。また、上記処理剤を無機酸化物粉末の表面に存在させて200℃以上に加熱処理するのが好ましい。なお、処理剤を無機酸化物粉末の表面に存在させる方法としては、処理剤を噴霧し、あるいは処理剤の溶液に無機酸化物粉末を浸すなど適宜の方法を用いることができる。加熱処理することによって処理剤と無機酸化物表面との結合反応が促進される。加熱温度は200℃以上～400℃以下が適当である。150℃程度では結合反応が不十分な場合があり、また400℃より高いと結合したアルキルシランが分解する懸念がある。

## 【0020】

以上のように、長鎖アルキルシランを触媒と共に溶剤に溶解してなる処理剤を用いて表面処理することによって、加熱下、例えば150℃に加熱したときの揮発成分量が30ppm以下、好ましくは10ppm以下の表面改質無機酸化物粉末を得ることができる。

## 【0021】

本発明は上記表面処理剤を用いたもののに他に、表面改質した後に揮発成分の揮発温度以上であって表面改質処理剤の分解温度以下で加熱処理することによって揮発成分を除去した表面改質無機酸化物粉末に関する。すなわち、表面改質処理の後に加熱処理して表面処理剤を粉末表面に固定すると共に有機揮発成分を除去する。具体的には、例えば、上記処理剤を無機酸化物粉末の表面に存在させて200℃以上～400℃以下に加熱して表面処理し、処理剤を無機酸化物粉末表面に結合させた後、さらに150以上～400℃以下に加熱しながら粉末表面に残留する揮発成分を除去する。

## 【0022】

このような表面処理とその後の二段階の加熱処理によって、残留揮発成分、例えば、ヘキサン、メタノール、エーテル等の溶媒、表面改質剤、これらの分解物や縮合物などを30ppm以下、好ましくは10ppm以下に低減することができる。なお、揮発成分の除去効率を高めるためには反応容器内に窒素やヘリウム、アルゴンなどの不活性ガスを導入して容器内を置換することが好ましい。また、表

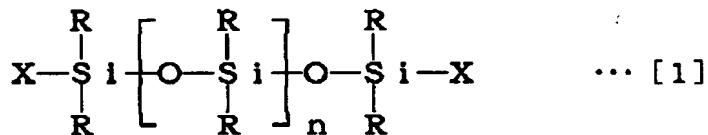
面改質後に有機溶媒で洗浄せずに二次加熱処理を行うのが好ましい。

【0023】

二次加熱の温度は表面処理剤によって多少異なるが、概ね150℃～400℃が好ましい。この温度より低いと表面処理剤を無機酸化物粉末表面に化学的に固定化するのが困難である。また、加熱温度が400℃より高いと表面改質剤が分解することがあり、無機酸化物粉末が黄変して着色したり、更にはその機能が極端に低下する場合もある。

【0024】

上記二段階の加熱処理を行う場合、表面処理剤としては次式[1]で表されるオルガノポリシロキサンを用いることができる。



式中、Rは水素またはアルキル基であり、アルキル基は一部がビニル基、フェニル基、ポリエーテル基、エボキシ基またはアミノ基によって置換されていてもよい。各々のSiに結合するRは同種または異種でもよい。Xは上記R、ハロゲン原子、水酸基もしくはアルコキシ基の加水分解性基である。nは15～500の整数である。このオルガノポリシロキサンを用いて表面改質処理することにより、樹脂に添加したとき分散性が良く、増粘効果が高く、しかも経時安定性に優れた無機酸化物粉末を得ることができる。

【0025】

また、表面処理剤として次式[2]、[3]、または[4]で表されるシラン化合物を用いることができる。これらのシラン化合物を用いることによって安価に表面改質でき、流動性が良く、しかも経時安定性に優れた無機酸化物粉末を得ることができる。





式中、Rはアルキル基、Xはハロゲン原子、水酸基またはアルコキシ基、ただし、式[3]、[4]のR<sup>1</sup>、R<sup>2</sup>、R<sup>3</sup>は同一でも異なってもよく、好ましくはそのうちの少なくとも一つは炭素数6以上である。

#### 【0026】

一般式[1]～[4]で表される化合物は2種以上を併用しても良い。特に、一般式[1]と一般式[2]、[3]、または[4]のいずれか一つとを混合した溶液を用い、触媒の存在下で表面処理したものは、表面改質効果とその経時安定性を更に高めることができる。触媒は、塩基性であるときにはアンモニア、またはジエチルアミン、トリエチルアミン等のアミン類が適当である。また酸性であるときには酢酸等の有機酸、あるいは塩酸、硝酸等の無機酸が適当である。

#### 【0027】

金属酸化物微粉末に処理剤を処理する方法は限定されない。通常の処理方法によることができる。具体的には、例えば、ヘンシェルミキサーなどに代表される攪拌装置を備えた容器に無機酸化物微粉末を入れ、窒素雰囲気下で攪拌し、表面改質剤、もしくは表面改質剤の混合溶液を噴霧し無機酸化物微粉末と混合し、加熱して反応させる、あるいは流動床型反応器に無機酸化物微粉末を導入してアルキルシラザン系化合物もしくは他の表面改質剤の混合溶液を気化させて無機酸化物微粉末と混合した後に加熱して反応させる。

#### 【0028】

##### 【発明の効果】

本発明の有機揮発成分が少ない無機酸化物粉末は、粉体塗料や電子写真用トナーなどの外添剤、または接着剤や塗料などの樹脂の粘度調整剤、または天然ゴムや合成ゴムおよびエンジニアプラスチックスなどの補強性充填剤、またはポリエチレンやポリエステルなどのフィルムのブロッキング防止剤などに好適に用いられる。また、これをウレタン樹脂、エポキシ樹脂、アクリル樹脂、不飽和ポリエスチル樹脂、ビニルエステル樹脂、またはシリコーン変性樹脂に配合して接着剤またはシーラントとして用いることができる。樹脂に配合する場合には表面改質無機酸化物粉体の量は50重量%以下が適当である。

## 【0029】

上記用途において、本発明の無機酸化物粉末は有機揮発成分が少ないので、例えば、電子写真用トナーの外添剤として使用した場合、揮発成分によるドラム内の汚染が低減され、接着剤や塗料などの粘度調整剤として用いた場合には、揮発成分の発生による機能低下や経時変化、気泡の発生などが抑制される。また、電子写真用の組成物に用いた場合には揮発成分によるスパーク、接点不良などの問題を生じない。

## 【0030】

## 【実施例および比較例】

本発明を実施例によって具体的に示す。揮発成分、粘度、疎水率は各々以下のようにして測定した。なお、実施例1～3および比較例1～3の結果を処理条件と共に表1に示した。また、実施例4～7および比較例4～6の結果を処理条件と共に表2に示した。

〔揮発成分〕：表面改質無機酸化物粉末0.2gをバイアル瓶に秤りとり、ガス測定器（バーキンエルマー社製品：ヘッドスペース GC-MS Q910）を用い、150℃で10分間加熱したときの揮発成分を定量した。

〔粘度〕：表面改質無機酸化物粉末7.5gをエポキシ樹脂（ジャパンエポキシレン社製エピコート828）142.5gに混ぜ込み、ホモミキサー（特殊機化工業社製品）によって3000rpm、3分間攪拌後、脱泡し、22℃で2時間保存した後の粘度をレオメーター（RS150 HAAKE社製）を用いて1/sで測定した。チキソトルピ一値は1/sと100/sの値の比をとった（[1/s]/[100/s]）。

〔疎水率〕：表面処理無機酸化物粉末1gと蒸留水100gを分液ロート（200ml）に入れ、ターブラーミキサーT2C型（Willy A. Bachofen社製）で10分間攪拌振とうし、次いで10分間静置した。その後、下部から抜き出した液体を石英セル（10mm容量）に入れ、分光光度計で500nmの透過率を純水をブランクとして測定した読み値を疎水率[%]とした。

## 【0031】

## 【実施例1】

シリカ粉末（BET比表面積200m<sup>2</sup>/g、気相法で製造、商品名Aerosil200）100

g を反応槽に入れ、窒素雰囲気下、攪拌しながら、シリカ粉末100gに対し、水3gを噴霧し、引き続きオクタデシルトリメトキシシラン30g、ジエチルアミン1g、およびヘキサン60gからなる混合溶液(表面処理剤)をスプレーし、200℃で1時間、加熱還流攪拌した後に、さらに1時間窒素をフローさせながら加熱攪拌した。反応終了後冷却して表面改質シリカ微粉体を調製した。

#### 【0032】

##### 〔実施例2、3〕

表1に示す量のシリカ粉末(BET比表面積130m<sup>2</sup>/g、気相法で製造、商品名Aerosil130)、ヘキサデシルトリメトキシシラン、ジエチルアミンを用い、加熱処理温度200℃とした他は実施例1と同様にして表面処理を行った(実施例2)。表1に示す量のシリカ粉末(BET比表面積300m<sup>2</sup>/g、気相法で製造、商品名Aerosil300)、ヘキサデシルトリメトキシシラン、エチレンジアミンを用い、加熱処理温度300℃とした他は実施例1と同様にして表面処理を行った(実施例3)。

#### 【0033】

##### 〔比較例1～3〕

アルキル鎖の短いヘキシルトリメトキシシランを用い、触媒を加えない他は実施例1と同様にしてシリカ粉末を表面処理した(比較例1)。ヘキサデシルトリメトキシシランを用い、触媒を添加せず、処理温度を120℃とした他は実施例1と同様にして表面処理を行った(比較例2)。処理剤としてジメチルポリシロキサンを用い、触媒を添加せず、処理温度を300℃とした他は実施例1と同様にして表面処理を行った(比較例3)。

#### 【0034】

表1に示すように、本発明の実施例1～3の表面改質シリカ粉末は、99%以上の疎水率を有し、揮発成分量が1ppm未満であり、これを樹脂に配合したときの粘性が約300Pa·s(297Pa·s)以上である。一方、アルキル鎖の短い比較例1の表面改質シリカ粉末は疎水性があまり高くなく、粘度も低い。また、比較例2の場合には処理温度が低く、処理剤が表面に十分に固定されていないため疎水性が大幅に低く、揮発成分の残量が多く、粘度も低い。比較例3の場合には疎水

性も粘度も高いが、揮発成分がかなり多く、電気電子材料への適用が難しい。

【0035】

【表1】

	実施例1	実施例2	実施例3	比較例1	比較例2	比較例3
[無機酸化物粉末] 比表面積(m <sup>2</sup> /g) 使用量(g)	200 100	180 100	300 100	200 100	200 100	200 100
[処理剤] 種類 処理剤量(g)	トリアルミニウム 30	トリアルミニウム 20	トリアルミニウム 40	トリアルミニウム 30	トリアルミニウム 30	トリアルミニウム 20
触媒	ナトリウム システィン	ナトリウム システィン	ナトリウム システィン	—	—	—
処理温度(°C) 処理時間(Hr)	200 1+1	250 1+1	300 1+1	200 1	120 1	300 1
吸水性(%)	>99	>99	>99	93	12	>99
揮発成分 粘度(Pa·s)	<1ppm 342	<1ppm 311	<1ppm 297	12ppm 62	50ppm 50	88ppm 311

## 【0036】

## 〔実施例4〕

シリカ粉末(BET 比表面積 200m<sup>2</sup>/g、気相法で製造、商品名 Aerosil 200) 100 g を反応槽に入れ、空素雰囲気下、攪拌しながら、シリコーンオイル(商品名:KF96-50cs、信越化学工業社製品) 20 g を含むヘキサン溶液をスプレーし、300℃で20分加熱攪拌して表面改質シリカ粉体を調製した。さらに、この表面改質シリカ粉体を反応槽に再度入れ、空素気流中、200℃で60分加熱して揮発成分を除去した。得られた表面改質シリカ粉体の揮発成分量は8 ppm であった。

## 【0037】

## 〔実施例5〕

シリカ粉末(BET 比表面積 130m<sup>2</sup>/g、気相法で製造、商品名 Aerosil 130) 100 g、およびオクタデシルトリメトキシシラン 10 g を含むヘキサン溶液を用い、250℃で20分加熱攪拌した他は実施例1と同様にして表面改質シリカ粉体を調製した。さらに、この表面改質シリカ粉体を反応槽に再度入れ、空素気流中、200℃で60分加熱して揮発成分を除去した。得られた表面改質シリカ粉体の揮発成分量は6 ppm であった。

## 【0038】

## 〔実施例6〕

シリカ粉末(BET 比表面積 380m<sup>2</sup>/g、気相法で製造、商品名 Aerosil 380) 100 g、およびシリコーンオイル(商品名:KF96-50cs、信越化学工業社製品) 30 g を含むヘキサン溶液を用い、300℃で20分加熱攪拌した他は実施例1と同様にして表面改質シリカ粉体を調製した。さらに、この表面改質シリカ粉体を反応槽に再度入れ、空素気流中、200℃で120分加熱して揮発成分を除去した。得られた表面改質シリカ粉体の揮発成分量は8 ppm であった。

## 【0039】

## 〔実施例7〕

シリカ粉末(BET 比表面積 200m<sup>2</sup>/g、気相法で製造、商品名 Aerosil 200) 100 g を反応槽に入れ、空素雰囲気下、攪拌しながら、シリコーンオイル(商品名:KF96-50cs、信越化学工業社製品) 20 g、デシルトリメトキシシラン 4.5 g、お

およびジエチルアミン 0.1 g からなる混合溶液をスプレーし、350°Cで20分加熱攪拌して表面改質シリカ粉体を調製した。さらに、この表面改質シリカ粉体を反応槽に再度入れ、窒素気流中、200°Cで120分加熱して揮発成分を除去した。得られた表面改質シリカ粉体の揮発成分量は 8 ppm であった。

#### 【0040】

##### 【比較例4】

シリカ粉末 (BET 比表面積 200m<sup>2</sup>/g、気相法で製造、商品名 Aerosil200) 100 g を反応槽に入れ、窒素雰囲気下、攪拌しながら、シリコーンオイル (商品名 :KF96-50cs、信越化学工業社製品) 20 g を含むヘキサン溶液をスプレーし、300°Cで20分加熱攪拌して表面改質シリカ粉体を調製した。得られた表面改質シリカ粉体の揮発成分量は 9.5 ppm であった。

#### 【0041】

##### 【比較例5】

シリカ粉末 (BET 比表面積 130m<sup>2</sup>/g の気相法で製造、商品名 Aerosil130) 100 g を反応槽に入れ、窒素雰囲気下、攪拌しながら、オクタデシルトリメトキシラン 10 g を含むヘキサン溶液をスプレーし、300°Cで20分加熱攪拌して表面改質シリカ粉体を調製した。得られた表面改質シリカ粉体の揮発成分量は 7.0 ppm であった。

#### 【0042】

##### 【比較例6】

シリカ粉末 (BET 比表面積 380m<sup>2</sup>/g、気相法で製造、商品名 Aerosil380) 100 g を反応槽に入れ、窒素雰囲気下、攪拌しながら、シリコーンオイル (商品名 :KF96-50cs、信越化学工業社製品) 30 g を含むヘキサン溶液をスプレーし、300°Cで20分加熱攪拌して表面改質シリカ粉体を調製した。得られた表面改質シリカ粉体の揮発成分量は 8.5 ppm であった。

【0043】

【表2】

	実験例4	実験例5	実験例6	実験例7	実験例4	実験例5	実験例6
[無機粉末 比表面積 使用量]	200 100 g	130 100 g	380 100 g	200 100 g	200 100 g	130 100 g	380 100 g
[処理剤] 種類 使用量	シリカゲル 20 g	シリカゲル 10 g	シリカゲル 30 g	シリカゲル 20 g チオカルボン酸 0.1g	シリカゲル 20 g	シリカゲル 10 g	シリカゲル 30 g
一歩加熱 時間	300 ℃ 20 分	250 ℃ 20 分	300 ℃ 20 分	350 ℃ 20 分	300 ℃ 20 分	300 ℃ 20 分	300 ℃ 20 分
二歩加熱 時間	200 ℃ 60 分	200 ℃ 120 分	200 ℃ 120 分	—	—	—	—
揮発量	8 ppm	6 ppm	8 ppm	8 ppm	9 ppm	70 ppm	85 ppm

(注) 比表面積 BET(m<sup>2</sup>/g)

【書類名】 契約書

【要約】

【課題】 残留揮発成分の少ない表面改質無機酸化物粉末の提供

【解決手段】 長鎖アルキルシランを触媒と共に溶剤に溶解してなる処理剤を用いて表面処理し、あるいは表面改質の後に有機揮発成分の揮発温度以上および表面改質処理剤の分解温度以下で加熱処理することによって揮発成分を30 ppm以下、好ましくは10 ppm以下に低減したことを特徴とし、粉体塗料や電子写真用トナーなどの外添剤、または接着剤や塗料などの樹脂の粘度調整剤、または天然ゴムや合成ゴムおよびエンジニアプラスチックスなどの補強性充填剤、またはポリエチレンやポリエステルなどのフィルムのブロッキング防止剤、各種樹脂の接着剤やシーラントとして好適な表面改質無機酸化物粉末。

【選択図】 なし